

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2002-506500

(P2002-506500A)

(43) 公表日 平成14年2月26日 (2002.2.26)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	FI	テマコード (参考)
F 01 N 3/08		F 01 N 3/08	A
B 01 D 53/94		B 01 J 23/58	Z A B A
B 01 J 23/58	Z A B	F 01 N 3/28	3 0 1 C
F 01 N 3/28	3 0 1	B 01 D 53/36	1 0 4 A

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願平11-505369	(71) 出願人	ジョンソン、マッセイ、パブリック、リミテッド、カンパニー
(86) (22) 出願日	平成10年6月24日 (1998.6.24)		イギリス国ロンドン、トラファルガー スクエア、コックスパー、ストリート、2-4
(85) 翻訳文提出日	平成11年12月27日 (1999.12.27)	(72) 発明者	ロバート、ジェイムズ、プリスレイ
(86) 国際出願番号	PCT/GB98/01838		イギリス国ケンブリッジ、ダックスフォード、グリーンエーカーズ、9
(87) 国際公開番号	WO99/00177	(72) 発明者	マーク、ブローガン
(87) 国際公開日	平成11年1月7日 (1999.1.7)		イギリス国ケンブリッジ、ワルポール、ロード、84
(31) 優先権主張番号	9713428.2	(74) 代理人	弁理士 佐藤 一雄 (外3名)
(32) 優先日	平成9年6月26日 (1997.6.26)		
(33) 優先権主張国	イギリス (GB)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 リーン-バーン内燃エンジン用の触媒コンバーター

(57) 【要約】

第1層にPtと第2層にRhとを含んでなる層状化排気ガス触媒は、NO_xおよび/または窒素と炭化水素および/またはCOとの触媒反応が炭化水素および/またはCOと酸素との触媒反応に比べて優れた選択性を示す。NO_xはリッチに上昇させる必要なく標準のリーン条件または理論空年比条件下でN₂に還元することができる。

【特許請求の範囲】

1. NO_x 貯蔵可能触媒成分を含んでなるリーナーバーンエンジン用の触媒コンバーターであって、

NO_x 貯蔵可能触媒成分が、 NO_x および／または窒素と炭化水素および／または CO との触媒反応が炭化水素および／または CO と酸素との触媒反応より優れた選択性を示すさらなる触媒成分を包含するように構築されていることを特徴とする、触媒コンバーター。

2. 第1層と第2層とを有する支持化層状触媒を含んでなるリーナーバーンエンジン用の触媒コンバーターであって、

第1層が、効果的に NO を酸化して NO_2 および／または NO_3 にすることを触媒するとともに、効果的に窒素として NO_3 を貯蔵し、かつ、さらに効果的に NO と O_2 とを放出する、第1番目の白金金属元素と NO_x 貯蔵成分とを含有するものであり、かつ、

第2層が、効果的に NO を還元して N_2 にする、第二番目の、かつ、異なる白金金属元素を含有する、触媒コンバーター。

3. 第1層が白金を含有してなり、かつ、第2層がロジウムを含有してなる、請求項2に記載の触媒コンバーター。

4. 第1層がアルミナ含有ウオッシュコートで担持された白金を含有し、および NO_x 貯蔵成分がバリウムであり、かつ、第2層がアルミナ非含有ウオッシュコートで担持されたロジウムを含有するものである、請求項3に記載の触媒コンバーター。

5. 第1層のウオッシュコートがアルミナ、セリア、およびジルコニア、必要に応じてこれらの二種またはそれ以上の混合酸化物を含んでなるものであり、かつ、第2層のウオッシュコートがセリアおよびジルコニア、必要に応じてこれらの混合酸化物を含有するものである、請求項4に記載の触媒コンバーター。

6. 第1層がカリウムをも包含するアルミナウオッシュコートで担持された白金を含んでなるものであり、第2層がセリア／ジルコニアウオッシュコートで担持されたロジウムと、第1層と第2層との間に付与されるウオッシュコートとバ

リウム化合物とを含んでなる中間層とを含んでなるものである、請求項 3 に記載の触媒コンバーター。

7. 排気ガス処理システムを有するリーンバーンガソリンエンジンであって、

排気ガス処理システムが請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の触媒コンバーターを含んでなることを特徴とする、エンジン。

8. エンジンがガソリン直噴エンジンであることを特徴とする、請求項 7 に記載のエンジン。

9. エンジンが全走行または実質的に全走行条件下で $\lambda < 1$ で運転される、請求項 7 または 8 に記載のエンジン。

10. エンジンと触媒コンバーターとの間に装備された SO_x 吸収剤もまた含んでなる、請求項 7 ～ 9 のいずれか一項に記載のエンジン。

11. エンジンからの排気ガスが触媒コンバーターを通過することを含んでなる、リーンバーンエンジンからの排出 NO_x を制御する方法であって、

触媒コンバーターが、 NO_x および／または窒素と炭化水素および／または CO との触媒反応が炭化水素および／または CO と酸素との触媒反応より優れた選択性を示す成分を有するものである、方法。

12. リーンバーンエンジンからの排出 NO_x を制御する方法であって、

二層またはそれ以上の層を有する触媒コンバーターの第 1 層で、 NO を触媒的に酸化して NO_2 および／または NO_3 にすることと、および前記第 1 層で NO_3 を窒素として貯蔵することと、

適切な排気ガス条件下で前記第 1 層から NO と O_2 とを放出することと、そして

前記適切な排気ガス条件下で触媒コンバーターの第 2 層で NO を N_2 に還元する

こととを含んでなる、方法。

13. エンジンが、 λ が 1 未満となるように制御されるものである、請求項 11 または 12 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】**リーナーバーン内燃エンジン用の触媒コンバーター**

本発明は、排気制御における改良に関し、より詳しくは、リーン条件下での NO_x 制御における改良に関するものである。

内燃エンジンから生じる排気を制御する問題はよく知られている。通常、排気ガスは過剰な酸素を含むために、各種の「リーナーバーン」自動車の場合には、 NO_x を還元することは特に困難である。燃費という理由から、商業上、環境上、リーナーバーンエンジンは強く推進されている。しかしながら、それと同時に、例えば既に言及したように NO_x 還元における困難性のように技術的な問題や、通常、逐次的に、過剰な空気によって生じる冷却排気ガスは、触媒コンバーター上で十分な転換を行う温度に到達することを非常に困難とするような技術的な問題がある。

リーナーバーンエンジン用の NO_x 転換として最も知られている手法は、リーン運転中においては NO_x を貯蔵するように働く、例えばBa、Ca、などの NO_x 貯蔵成分触媒としての包含物が市販的に用いられている。排気ガスの酸素量が低下した場合、 NO_x 貯蔵成分は吸収した NO_x を放出する。例えば、EP 5 609 91号は、排気ガスの酸素量を低下させることは、空燃比を制御することによって排気ガスをリッチまたは理論空燃比となるように行うことによって達せられるシステムを開示している。様々な技術はこのようなシステムを達成可能であり、主として、通常のリーン走行中にリッチ「スパイク」またはエクスカージョンを付与するように、複雑に機械設計されているエンジン管理システムによって達成可能である。良く知られた NO_x 貯蔵コンセプトを包含したリーナーバーンエンジンの実践的な例は、 NO_x 貯蔵成分が飽和に達することを予め定めた評価

によって $\lambda > 1$ エクスカージョンを付与するような計画的なエンジン管理手法に使用できる一方、加速時もしくはいくつかの他のエンジン運転サイクルの部分において通常の λ 変動は1超過で使用できる、というのが我々の確認である。

前記EP 5 609 91号に加えて、少なくとも主としてリーナーバーン領域で運転するようなガソリン自動車からの排気ガスを処理する別の提案が、リチウムを

包含するアルミ支持体と結合した NO_x 貯蔵成分を包含する触媒を用いて硫黄酸化物および硫化塩を処理することが、US 5, 575, 983号 (toyota) に開示されている。ToyotaのEP 664 147号はこのシリーズをアレンジした三重成分触媒を開示している。ToyotaのEP 716 876号は NO_x 吸蔵材料とパラジウムとを含有する第1層と白金とパラジウムとを包含する第2層とからなる層状化触媒を開示している。別の層状化触媒構造物はWO 95/00235号に教示されているけれども、これは理論空燃比近傍で運転する自動車に最も関係のあるものである。この層状化触媒は両層にパラジウムを有しており、かつ、第1層（最も深い部分）においては BaO (NO_x 貯蔵成分) を有し、セリアジルコニア、 La_2O_3 、などとも有することができる。

我々は、エンジンおよび車の設計者に改良され適応性のあるものを提供することができて、そして、主として、触媒設計と排気ガスの化学的作用とを結合することによるものである、リーンバーンエンジンにおいて基本的に異なった NO_x 還元方法を開発したのである。

リーン運転中、エンジン（均一で満足のゆく燃焼の設計）は、可変量の酸素、窒素酸化物、一酸化炭素、各種炭化水素種を含有する排気ガスを排出する。理論空燃比点 ($\lambda = 1$) では、還元物と酸化物とは化学的に平衡である。我々は確信するけれども、そのような確信に拘泥するつもりはないが、少なくとも現代世代のガソリン直噴エンジンであるリーンバーンエンジンであっても、たとえ一定の走行条件下であっても排気ガス組成物中に微細な変種が存在するが、本発明によ

る新しい触媒コンバーターによってリーン条件下で NO_x を還元することは可能である。

本発明は、 NO_x 貯蔵可能触媒成分を含んでなるリーンバーンエンジン用の触媒コンバーターであって、この触媒成分が、 NO_x および／または窒素と炭化水素および／または CO との触媒反応が炭化水素および／または CO と酸素との触媒反応より優れた選択性を示すものを包含する点に特徴を有するものを提供する。

貯蔵された NO_x 、ここで記載した「硝酸塩」（けれども、他の窒素酸化物は

触媒成分の表面で生じたものでもある)は、ガス状の炭化水素および／またはCOと優先的に反応したものであるということは、本発明の性質であると確信する。好ましくは、触媒成分は、通常の走行条件下で、排気ガスと比べて酸素および／または酸化種が不足するように設計する。

本発明において用いる好適なNO_x貯蔵成分は一または二以上のアルカリ金属成分またはアルカリ土類金属成分を包含する。

本発明は各種のリーンバーンエンジン、特に直噴ガソリンエンジンが、断続的なリーンモードにおいて、運転することを可能にする。このことは、改良された燃費において相当有望であり、そして、運転可能性における改良をも提案することが可能となる。さらに、根本的に異なる手法は、すなわちNO_x貯蔵に比べて特に選択性を有するように設計された触媒を用いる手法は、当業者に慣用NO_x貯蔵触媒のおける場合と比べて優れた触媒処方物による機会を提供することを可能とする。NO_x貯蔵による触媒は飽和され易くそして定期的に復活が必要とされることはすぐに認識されるであろう。本発明では、そうなる理由は完全には理解されていないが、NO_xは触媒を飽和させない、けれどもそうかもしれないが、分子レベルでは、触媒成分のある種の表面において硝酸塩としてNO_xが貯蔵されうる。

本発明によれば、触媒は所望の選択性を達成するように設計され処方される。そのような望ましい選択性に関する本発明の教示に従えば、当業者はいくつかの方法によってそのような選択性を達成することができる。好適な触媒は、第1層において、効果的にNOを酸化してNO₂および／またはNO₃にすることを触媒する白金属元素とNO_x貯蔵成分とで支持されており、かつ、NOをN₂に効果的に還元する白金属元素を含有する第2層とかなる触媒である。好ましくは、この触媒は、高表面積のアルミナ含有支持体上で担持された白金およびバリウムまたはカルシウムを含んでなる第1層を含んでなる。好ましくは、この触媒の第2層はアルミナを含有していない高表面積の支持体上で担持されたロジウムおよびセリウムを含んでなる。より好ましくは、第一層において十分な量のロジウムを全く有さず、そして第2層において十分な量の白金またはNO_x貯蔵成分を全く

有さないものである。

上記した触媒の一つの改変物は、第1層と第2層との間に一または二以上の細孔物質の中間層を包含する。確信できることは、さらなる層は二つの層の触媒的な機能を隔てる役割をし、そして寿命試験後の結果における改良が観察されたことである。従って第1層の堆積後に、そして第一の白金金属元素との含浸、さらなる細孔ウオッシュコート層を、好ましくはアルミナーセリアージルコニア混合物を、堆積させる。このことは、好ましくは、 NO_x 貯蔵成分もしくは前駆体、特に好適なバリウム塩を含浸させて、そして条件下およびそこに結晶化セリアージルコニア混合酸化物を導入する少しの間に焼結させる。第二層は、ここで記載したように、その時堆積する。このような改良にあつては、第1層はアルミナウオッシュコートのみを含んでなり、および白金、およびカリウム化合物をも含有する。

該触媒コンバーターはまた、炭化水素および一酸化炭素排気の法定基準を満たすものでなければならないことは言うまでもない。当業者はこのような要求を理

解し、そして白金金属元素触媒、必要に応じて塩基性金属、例えばアルミナ、セリア、ジルコニア、シリカおよびこれら混合物の酸化物との組み合わせで、そしてセラミックまたは金属ハニカム触媒支持体上に流し込んだものを用いる方法によって、この基準を満たすことができるであろう。

ウオッシュコートの堆積および触媒成分と活性成分である前駆体およびその塩との含浸は、触媒の処方および慣用調製方法で良く知られている一般的な原理に従って行うことができる。所望の場合、ウオッシュコートはそれぞれの層用としてその他の成分を、例えば溶媒としてもしくはウオッシュコート粒子の予備堆積として含有することができる。特に、触媒は炭化水素捕捉成分、例えばゼオライト、改良ゼオライトを含有して改良することができる。慣用方法はウオッシュコート層を結合する焼結と所望の最終製品を得るために必要な反応を行うことが含まれる。

本発明のさらなる別の態様によれば、本発明の新規な触媒コンバーターの上流で硫黄酸化物（しばしば、「 SO_x 」と略す）を吸収することを包含する。我々

は、そのような別の一般に有用な技術を開示した我々のEP814242号において言及している。さらにまた望ましい態様によれば、低硫黄燃料（例えば、Sが50ppm未満）および低硫黄潤滑油、例えば天然オイルから精製したものよりも合成した潤滑油、の双方において本発明による触媒コンバーターを用いることができる。

本発明は、図面によって説明することができる。図1は慣用NO_x捕捉触媒を搭載した直噴エンジンの排気を表した図である。図2は本発明による選択的触媒を搭載した上記と同一エンジンの排気を表した図である。

三菱自動車ギャランGD iに、400セル/平方インチのコーディエライトモノリスに担持したアルミナウオッシュコート上に支持した市販品の高効率リーンNO_xPt/Rh触媒を搭載した。この触媒処方物はNO_x貯蔵としての役割を

果たすBaを含有する。このエンジンはECEテストサイクル中はリーン走行であり、いつの時間でも空燃比が $\lambda = 1$ を越えることはないようにコントロールされている。

図1に関しては、スピードは複合サイクルで示されるECEサイクル中でのものであり、蓄積NO_x濃度は触媒前（エンジン外）および触媒後（「排気管」）の、二つの位置を示す。エンジン外NO_xはどんどん蓄積される一方、1分後には触媒は操作温度に到達してNO_xをN₂に転換する。しかしながら、転換していないNO_x比率は存在し、それゆえ累積排気管排気もまた絶えず増加する、

同一の自動車に、先に詳細に説明によって処方した実験用触媒を搭載して、同一の試験をおこなった。その結果は図2に示した通りであった。図2では、初期後においては、平坦な累積排気管NO_x排気は平坦な軌跡を示し、エンジンから排出された全てのNO_xは転換されていることを示している。さらに、研究では、期待されたNO_x貯蔵能力が予想を越えて何倍にも存在することが分かった。実験用触媒は、炭化水素および/またはCOと酸素との反応と比較してNO_xおよび/または硝酸塩と炭化水素および/またはCOとの反応が予想外の価値ある選択性を表すものであると説明できた。新規な触媒は通常の使用条件下で、高価なエクスカージョンを直接付与するようなエンジン管理をすることなく、NO_x

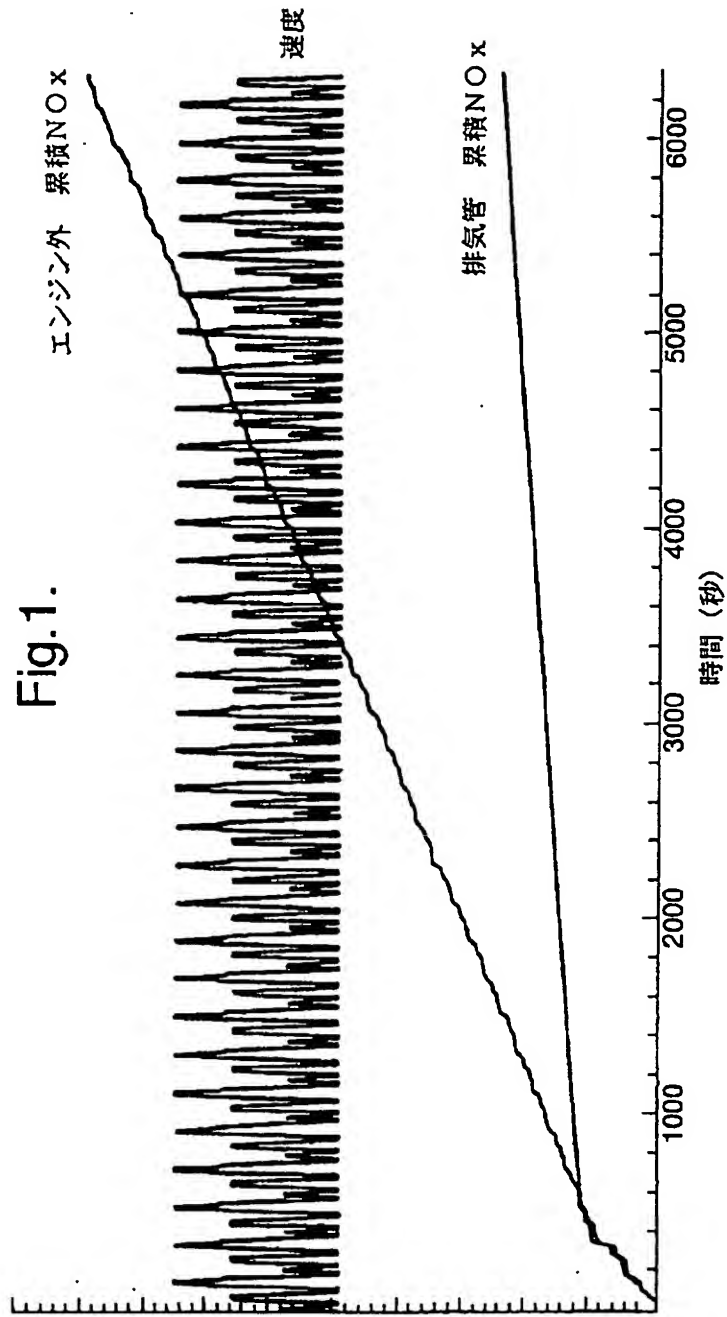
貯蔵成分の連続的な復活を示す。

本発明における有用な支持体触媒は下記のようにして調整する。

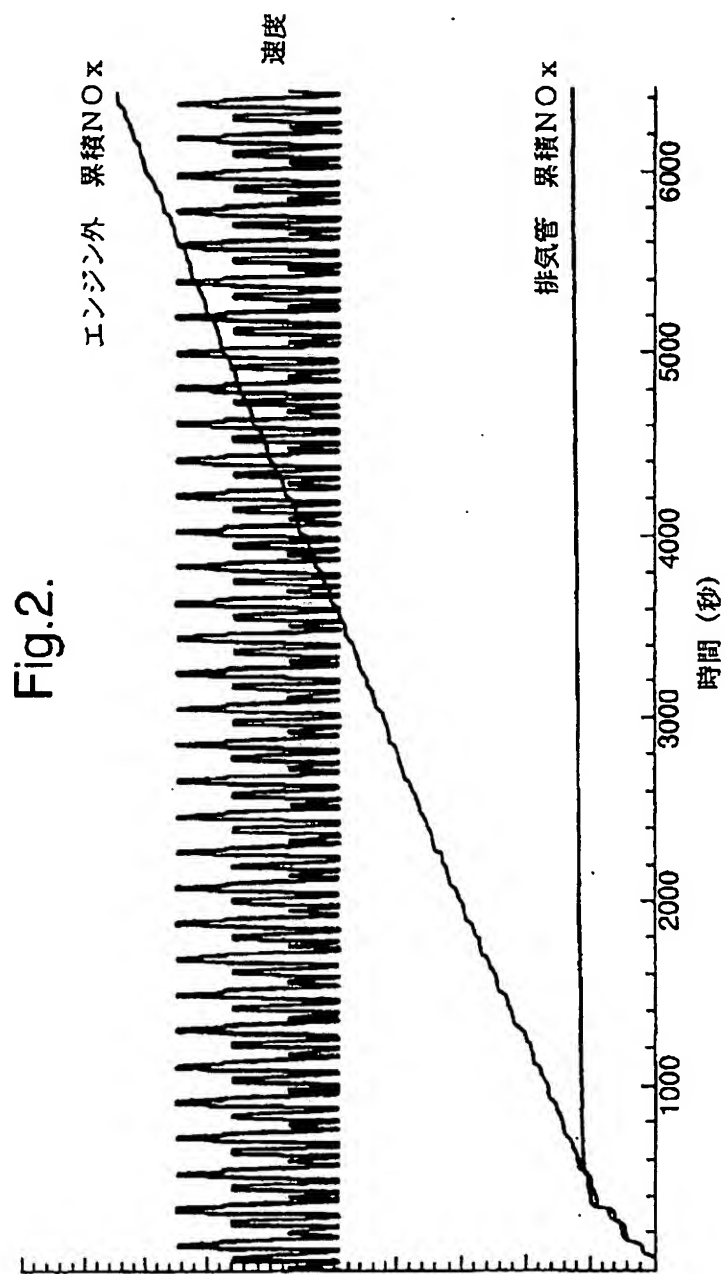
400セル/平方インチ (62セル/平方センチメートル) のコーディエライト ハニカム モノリス上に、アルミナ、セリア、およびジルコニアの混合スラリーの触媒ウオッシュコート下層に堆積させる。得られたモノリスは500°C、空气中、1時間焼結される。最初の層はウオッシュコート モノリスにテトラアミン白金塩化物と酢酸バリウムとの混合溶液を含浸させて、モノリスに堆積して、好ましい白金とバリウムとの混合物を得ることができる。酢酸バリウムはBa (28 g/リットル)

を800 g/立方フィートの負荷によって堆積し、白金はPt (3.5 g/リットル) を100 g/立方フィートの負荷によって堆積する。このモノリスは再び同一の条件下で焼結される。第2ウオッシュコート層はその次に堆積されて、ロジウム硝酸塩との混合によって、セリア-好適なジルコニア (11% CeO₂、89% ZrO₂) の1.0 g/立方インチ (0.06 g/立方センチメートル) の堆積物を得て、第2ウオッシュコート層に6 g/立方フィートの (0.21 g/リットル) Rhの堆積物を得る。処理したモノリスは同一の条件で再び焼結され、そして次に第2回目の含浸が酢酸セリウムを用いて行われて、Ceが400 g/立方フィートの (14 g/リットル) で堆積する。モノリスを再び同一の条件で焼結する。

【図 1】



【図2】



【手続補正書】特許法第184条の8第1項

【提出日】平成11年6月29日（1999. 6. 29）

【補正内容】

請求の範囲

1. NO_x貯蔵可能触媒成分を含んでなるリーナーバーンエンジン用の触媒コンバーターであって、

NO_x貯蔵可能触媒成分が、NO_xおよび／または窒素と炭化水素および／またはCOとの触媒反応が炭化水素および／またはCOと酸素との触媒反応より優れた選択性を示すさらなる触媒成分を包含するように構築されていることを特徴とする、触媒コンバーター。

2. 白金を含有する第1層と、ロジウムを含有する第2層とを有するものである、請求項1に記載の触媒コンバーター。

3. 第1層がアルミナ含有ウオッシュコートで担持された白金を含有し、およびNO_x貯蔵成分がバリウムであり、かつ、第2層がアルミナ非含有ウオッシュコートで担持されたロジウムを含有するものである、請求項2に記載の触媒コンバーター。

4. 第1層のウオッシュコートがアルミナ、セリア、およびジルコニア、必要に応じてこれらの二種またはそれ以上の混合酸化物を含んでなるものであり、かつ、第2層のウオッシュコートがセリアおよびジルコニア、必要に応じてこれらの混合酸化物を含有するものである、請求項3に記載の触媒コンバーター。

5. 第1層がカリウムをも包含するアルミナウオッシュコートで担持された白金を含んでなるものであり、第2層がセリア／ジルコニアウオッシュコートで担持されたロジウムと、第1層と第2層との間に付与されるウオッシュコートとバリウム化合物とを含んでなる中間層とを含んでなるものである、請求項2に記載の触媒コンバーター。

6. 排気ガス処理システムを有するリーナーバーンガソリンエンジンであって、

排気ガス処理システムが請求項1～5のいずれか一項に記載の触媒コンバーターを含んでなることを特徴とする、エンジン。

7. エンジンがガソリン直噴エンジンであることを特徴とする、請求項6に記載のエンジン。

8. エンジンと触媒コンバーターとの間に装備されたSO_x吸収剤もまた含んでなる、請求項6または7に記載のエンジン。

9. エンジンからの排気ガスが触媒コンバーターを通過することを含んでなる、リーンバーンエンジンからの排出NO_xを制御する方法であって、

触媒コンバーターが、NO_xおよび／または窒素と炭化水素および／またはCOとの触媒反応が炭化水素および／またはCOと酸素との触媒反応より優れた選択性を示す成分を有するものである、方法。

10. エンジンが、 λ が1未満となるように制御されるものである、請求項9に記載の方法。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No. PCT/GB 98/01838		
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 - 801053/94		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 8010		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No.	
X	EP 0 716 876 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 19 June 1996 cited in the application	1,2, 11-13
Y	see page 2, line 54 - page 4, line 5 see page 4, line 16 - page 6, line 10 ---	4,5,7,8
Y	US 5 459 119 A (ABE FUMIO ET AL) 17 October 1995 see column 2, line 38 - column 5, line 61 see column 8, line 25 - column 15, line 50; tables 1,2 ---	4,5,7,8
A	EP 0 669 157 A (TOYOTA MOTOR CO LTD ;CATALER IND CO (JP)) 30 August 1995 see page 4, line 50 - page 6, line 23; claims 1-22 ---	1-5,7,8, 11,12
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		
<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" documents of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" documents of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "A" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 28 September 1998	Date of mailing of the international search report 07/10/1998	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.O. Box 5818 Petersilien 2 AL - 2280 HW Pilsen Tel: (+31-70) 340-2040, Tx: 31 651 epo nl Fax: (+31-70) 340-2015	Authorized officer Cubas Alcaraz, J	

(15)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/GB 98/01838

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 771 584 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 7 May 1997 see column 3, line 5 - column 5, line 47; claims 1-11 ---	1,2,4-6
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 9141 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class J04, AN 91-298482 XP002078763 & JP 03 196841 A (NOK CORP) , 28 August 1991 see abstract ---	1-3
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 9318 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class E36, AN 93-146240 XP002078764 & JP 05 076771 A (TOYO KOGYO CO) , 30 March 1993 see abstract -----	10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Intern. Application No.

PCT/GB 98/01838

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0716876 A	19-06-1996	JP 8168675 A	02-07-1996
		AU 677534 B	24-04-1997
		AU 4050995 A	27-06-1996
		US 5702675 A	30-12-1997
US 5459119 A	17-10-1995	JP 6233918 A	23-08-1994
EP 0669157 A	30-08-1995	JP 7232064 A	05-09-1995
		AU 670727 B	25-07-1996
		AU 1344195 A	07-09-1995
EP 0771584 A	07-05-1997	JP 9122486 A	13-05-1997
		AU 692118 B	28-05-1998
		AU 7048796 A	03-07-1997

フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW

(72)発明者 アントニー、デイビッド、クラーク
イギリス国ケンブリッジ、スエズ、ロード、25

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.